



日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日      2003年 9月 4日  
Date of Application:

出願番号      特願2003-312303  
Application Number:

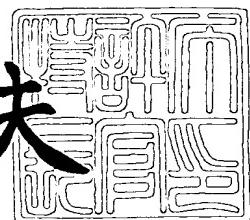
[ST. 10/C] : [JP2003-312303]

出願人      株式会社デンソー  
Applicant(s):

2003年10月 6日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫



**【書類名】** 特許願  
**【整理番号】** P03059  
**【提出日】** 平成15年 9月 4日  
**【あて先】** 特許庁長官殿  
**【国際特許分類】** H01F 1/12  
**【発明者】**  
 【住所又は居所】 愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会社デンソー内  
 【氏名】 鈴木 康義  
**【発明者】**  
 【住所又は居所】 愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会社デンソー内  
 【氏名】 野村 由利夫  
**【発明者】**  
 【住所又は居所】 愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会社デンソー内  
 【氏名】 西島 義明  
**【発明者】**  
 【住所又は居所】 大阪府吹田市青葉丘南8番P-505  
 【氏名】 三宅 正司  
**【発明者】**  
 【住所又は居所】 兵庫県西宮市豊楽町6の5  
 【氏名】 卷野 勇喜雄  
**【発明者】**  
 【住所又は居所】 大阪府箕面市今宮3-7-5 ラークハウス202号  
 【氏名】 佐藤 鉄兵  
**【特許出願人】**  
 【識別番号】 000004260  
 【氏名又は名称】 株式会社デンソー  
**【代理人】**  
 【識別番号】 100098420  
 【住所又は居所】 名古屋市中区金山一丁目9番19号 ミズノビル4階  
 【弁理士】  
 【氏名又は名称】 加古 宗男  
 【電話番号】 052-322-9771  
**【先の出願に基づく優先権主張】**  
 【出願番号】 特願2002-310377  
 【出願日】 平成14年10月25日  
**【手数料の表示】**  
 【予納台帳番号】 036571  
 【納付金額】 21,000円  
**【提出物件の目録】**  
 【物件名】 特許請求の範囲 1  
 【物件名】 明細書 1  
 【物件名】 図面 1  
 【物件名】 要約書 1  
 【包括委任状番号】 9406789

**【書類名】特許請求の範囲****【請求項 1】**

軟磁性粉末の表面に酸化膜を形成する表面酸化工程と、  
前記軟磁性粉末をプレス成形するための軟磁性粉末の成形材料を作製する工程と、  
前記軟磁性粉末の成形材料を所定形状にプレス成形するプレス成形工程と、  
前記軟磁性粉末のプレス成形物をミリ波焼結装置又は放電プラズマ焼結装置を用いて酸化膜周辺部を融点温度近傍に温度上昇させて焼結して軟磁性材料を製造する焼結工程と  
を有することを特徴とする軟磁性材料の製造方法。

**【請求項 2】**

軟磁性粉末の表面に酸化膜を形成する表面酸化工程と、  
前記軟磁性粉末をプレス成形するための軟磁性粉末の成形材料を作製する工程と、  
前記軟磁性粉末の成形材料を所定形状にプレス成形しながら該プレス成形物をミリ波焼結装置又は放電プラズマ焼結装置を用いて酸化膜周辺部を融点温度近傍に温度上昇させて焼結して軟磁性材料を製造するプレス成形・焼結工程と  
を有することを特徴とする軟磁性材料の製造方法。

**【請求項 3】**

前記表面酸化工程において、ミリ波焼結装置又は放電プラズマ焼結装置を用いて酸化性雰囲気中で前記軟磁性粉末の表面を加熱することで、前記軟磁性粉末の表面に前記酸化膜を形成することを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の軟磁性材料の製造方法。

**【請求項 4】**

前記軟磁性粉末は、平均粒径が  $0.01 \sim 10 \mu\text{m}$  であることを特徴とする請求項 1 乃至 3 のいずれかに記載の軟磁性材料の製造方法。

**【請求項 5】**

前記軟磁性粉末は、Fe-Al 合金、Fe-Al-Si 合金、Fe-Si 合金、Fe のいずれかを主成分とすることを特徴とする請求項 1 乃至 4 のいずれかに記載の軟磁性材料の製造方法。

**【請求項 6】**

前記軟磁性粉末を製造する工程で、前記軟磁性粉末の製造原料に Cu 系粉末を添加して粉碎装置で粉碎することを特徴とする請求項 1 乃至 5 のいずれかに記載の軟磁性材料の製造方法。

**【請求項 7】**

前記表面酸化工程の前に、還元性雰囲気中で前記軟磁性粉末を加熱して該軟磁性粉末の表面を活性化することを特徴とする請求項 1 乃至 6 のいずれかに記載の軟磁性材料の製造方法。

**【請求項 8】**

軟磁性粉末の表面に酸化膜を形成する表面酸化工程と、  
前記軟磁性粉末をプレス成形するための軟磁性粉末の成形材料を作製する工程と、  
前記軟磁性粉末の成形材料を所定形状にプレス成形するプレス成形工程と、  
前記軟磁性粉末のプレス成形物を焼結して軟磁性材料を製造する焼結工程とを有する軟磁性材料の製造方法において、

前記表面酸化工程において、ミリ波焼結装置又は放電プラズマ焼結装置を用いて酸化性雰囲気中で前記軟磁性粉末の表面を加熱することで、前記軟磁性粉末の表面に前記酸化膜を形成することを特徴とする軟磁性材料の製造方法。

【書類名】明細書

【発明の名称】軟磁性材料の製造方法

【技術分野】

【0001】

本発明は、軟磁性粉末のプレス成形物を焼結して軟磁性材料を製造する軟磁性材料の製造方法に関するものである。

【背景技術】

【0002】

近年、軟磁性材料の高透磁率化、低鉄損化等を目的として、軟磁性粉末のプレス成形物を焼結して軟磁性材料を製造する技術が研究されている。この製造技術は、例えば、特許文献1（特開平5-36514号公報）に示すように、まず、アトマイズ合金の粉末の表面を空气中で酸化させて、粉末表面に軟磁性のNi-Znフェライト薄膜を形成し、その後、窒素雰囲気中でAlのスパッタリングを行って、AlNを主成分とする絶縁膜をNi-Znフェライト薄膜上に形成する。その後、この軟磁性粉末にB<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末を添加して軟磁性材料の成形材料を作り、これを所定形状にプレス成形した後、ホットプレス法により、この軟磁性粉末のプレス成形物を加圧しながら1000℃で焼結して、軟磁性材料を製造するようにしている。

【特許文献1】特開平5-36514号公報（第3頁～第4頁等）

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0003】

しかしながら、上記製造方法では、ホットプレス法により軟磁性粉末のプレス成形物を加圧焼結する際に、プレス圧力によって軟磁性粉末表面の絶縁膜に亀裂が生じて軟磁性粉末間の絶縁性が低下する現象が発生し、焼結した軟磁性材料の鉄損（渦電流損）が増大するという問題がある。かといって、絶縁膜の亀裂を防止するために、絶縁膜の膜厚を厚く形成すると、軟磁性材料中の磁性材の密度が低下して飽和磁束密度が低下してしまい、磁気特性が悪くなる。しかも、ホットプレス法による焼結では、軟磁性粉末間の接合強度が弱く、軟磁性材料の機械的強度が弱いという欠点がある。その上、アトマイズ合金粉末の表面に軟磁性のNi-Znフェライト薄膜を形成する工程や、窒素雰囲気中でAlのスパッタリングを行って絶縁膜を形成する工程に手間がかかる、製造コストが高くなるという問題もある。

【0004】

本発明はこのような事情を考慮してなされたものであり、従って、本発明の目的は、低鉄損、高密度、高強度、生産性の要求を全て高いレベルで満足することができる軟磁性材料の製造方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0005】

上記目的を達成するために、請求項1に記載の軟磁性材料の製造方法は、軟磁性粉末の表面に酸化膜を形成する表面酸化工程と、前記軟磁性粉末をプレス成形するための軟磁性粉末の成形材料を作製する工程と、前記軟磁性粉末の成形材料を所定形状にプレス成形するプレス成形工程と、前記軟磁性粉末のプレス成形物をミリ波焼結装置又は放電プラズマ焼結装置を用いて酸化膜周辺部を融点温度近傍に温度上昇させて焼結して軟磁性材料を製造する焼結工程とを実行するようにしたものである。このように、焼結工程で、ミリ波焼結装置（又は放電プラズマ焼結装置）を用いて軟磁性粉末のプレス成形物にミリ波（又は放電プラズマ）を照射すると、そのミリ波（又は放電プラズマ）のエネルギーが電気抵抗値の大きい軟磁性粉末表面の酸化膜に局所的に作用することで、軟磁性粉末の内部温度をさほど上昇させることなく、軟磁性粉末表面の酸化膜周辺部のみが局所的に融点温度近傍に効率良く加熱され、それによって、軟磁性粉末間の酸化膜どうしが拡散接合して、軟磁性材料の焼結物として一体化される。

【0006】

このように、焼結工程で、ミリ波焼結装置（又は放電プラズマ焼結装置）を用いれば、焼結工程前のプレス成形工程で、軟磁性粉末表面の酸化膜に亀裂が生じたとしても、その後の焼結工程で、軟磁性粉末表面の酸化膜が局所的に融点温度近傍に加熱されることで、その酸化膜が再び成長して酸化膜の亀裂が修復される。これにより、軟磁性粉末間の絶縁性を十分に確保できて、低鉄損の軟磁性材料を焼結できる。

#### 【0007】

この場合、焼結工程で、酸化膜の亀裂を修復できるため、酸化膜の膜厚を厚く形成する必要がなく、例えば数nmレベルの薄い酸化膜であっても、軟磁性粉末間の絶縁性を十分に確保できる。このような酸化膜の薄膜化により、軟磁性材料中の磁性材の密度を高密度化でき、高飽和磁束密度化（高透磁率化）を実現でき、磁気特性を向上することができる。しかも、酸化膜の薄膜化によって軟磁性粉末の小粒径化が可能となり（例えば、請求項4のように、軟磁性粉末の平均粒径を0.01~10μmという微小粒径にすることが可能となり）、後述するホールペッチの法則から明らかなように、軟磁性粉末の小粒径化によって軟磁性材料の高強度化が可能となる。その上、製造工程も比較的簡単であり、生産性にも優れている。

#### 【0008】

本発明は、請求項1のように、プレス成形工程終了後に、ミリ波焼結装置又は放電プラズマ焼結装置を用いて焼結工程を実行するようにしても良いし（つまりプレス成形と焼結とを別々に実行するようにしても良いし）、請求項2のように、プレス成形と焼結とを同時に実行し、軟磁性粉末の成形材料を所定形状にプレス成形しながら該プレス成形物をミリ波焼結装置又は放電プラズマ焼結装置を用いて酸化膜周辺部を融点温度近傍に温度上昇させて焼結して軟磁性材料を製造するようにしても良い。このように、プレス成形と焼結とを同時に実行すれば、軟磁性粉末表面の酸化膜周辺部を融点温度近傍に加熱して酸化膜を成長させながらプレス成形を行うことができるため、酸化膜の亀裂発生を防止しながら焼結でき、或は、酸化膜の亀裂の端緒を修復しながら焼結でき、軟磁性粉末間の絶縁性を十分に確保した低鉄損の軟磁性材料を焼結できる。しかも、プレス成形と焼結とを同時に行えば、工程数を少なくでき、生産性を向上できるという利点もある。

#### 【0009】

また、請求項3のように、表面酸化工程において、ミリ波焼結装置又は放電プラズマ焼結装置を用いて酸化性雰囲気中で軟磁性粉末の表面を加熱することで、該軟磁性粉末の表面に酸化膜を形成するようにしても良い。つまり、軟磁性粉末を製造する段階で、軟磁性粉末の表面が少し酸化されるので、表面酸化工程において、ミリ波焼結装置（又は放電プラズマ焼結装置）を用いて軟磁性粉末を加熱すれば、ミリ波（又は放電プラズマ）のエネルギーが軟磁性粉末の電気抵抗値の大きい表面酸化部分に局所的に作用して、軟磁性粉末表面が局所的に高温に加熱される。これにより、軟磁性粉末の表面に数nmレベルの薄い酸化膜を均一に生成することができる。

#### 【0010】

但し、本発明は、表面酸化工程において、ミリ波や放電プラズマ以外の加熱手段（例えば電気炉等）を用いて軟磁性粉末の表面に酸化膜を形成するようにしても良い。例えば、電気炉で酸化膜を形成する場合は、雰囲気温度（加熱温度）、加熱時間、軟磁性粉末のAl含有量やSi含有量によって酸化膜の膜厚を調整すれば良い。

#### 【0011】

また、請求項5のように、軟磁性粉末は、Fe-Al合金、Fe-Al-Si合金、Fe-Si合金、Feのいずれかを主成分とするものを用いると良い。Fe-Al系、Fe-Al-Si系、Fe-Si系の軟磁性粉末を加熱すると、Feよりも酸化速度が速いAlやSiが軟磁性粉末の表面層に拡散して酸化され、軟磁性粉末の表面がAlやSiの酸化物で均一に覆われる。従って、Fe-Al系、Fe-Al-Si系、Fe-Si系の軟磁性粉末を用いれば、軟磁性粉末の表面に酸化膜を能率良く形成することができる。また、Feの粉末を用いれば、粉末表面のFeが酸化されて酸化鉄の酸化膜が形成される。Al、Si、Feのいずれの酸化膜でも、粉末間の絶縁性を十分に確保することができる。

**【0012】**

また、請求項6のように、軟磁性粉末を製造する工程で、軟磁性粉末の製造原料にCu系粉末を添加して粉碎装置で粉碎するようにしても良い。例えば、Fe-Al系粉末にCu系粉末を添加して粉碎すれば、粉末表面に部分的にFe-Al-Cu合金層が形成され、その後の表面酸化工程で、このFe-Al-Cu合金層が酸化されて絶縁性と柔軟性に優れた酸化膜(FeAlCuO膜)が形成される。

**【0013】**

また、請求項7のように、表面酸化工程の前に、還元性雰囲気中で軟磁性粉末を加熱して該軟磁性粉末の表面を活性化するようにすると良い。このようにすれば、表面酸化工程で、良質の酸化膜を短時間で均一に生成することができる。しかも、軟磁性粉末の表面を活性化する過程で、軟磁性粉末が加熱されて焼鈍(アニール)され、軟磁性粉末が軟化した状態となる。これにより、プレス成形工程で、軟磁性粉末間の空隙を押し潰すように軟磁性粉末が変形しやすくなり、軟磁性材料中の磁性材の密度をより一層高密度化することができる。

**【0014】**

以上説明した請求項1乃至7に係る発明は、焼結工程でミリ波焼結装置又は放電プラズマ焼結装置を用いることを必須要件としたが、焼結工程でミリ波や放電プラズマ以外の加熱手段(例えば電気炉等)を用いる場合でも、請求項8のように、表面酸化工程において、ミリ波焼結装置又は放電プラズマ焼結装置を用いて酸化性雰囲気中で軟磁性粉末の表面を加熱して酸化膜を形成するようにしても良い。このようにすれば、軟磁性粉末表面を局所的に高温に加熱して、軟磁性粉末の表面に数nmレベルの薄い酸化膜を均一に生成することができる。

**【発明を実施するための最良の形態】****【0015】**

以下、本発明を実施するための最良の形態について、2つの実施例1、2を用いて説明する。

**【実施例1】****【0016】**

本発明の実施例1における軟磁性材料の製造方法は、図1に示すように、粉碎工程→表面活性化工程→表面酸化工程→バインダー配合工程(成形材料作製工程)→プレス成形工程→脱バインダー工程→焼結工程を順に実行するものである。以下、これら各工程の処理を説明する。

**[粉碎工程]**

軟磁性粉末の製造原料としては、Fe-Al合金、Fe-Al-Si合金、Fe-Si合金、Feのいずれかを主成分とする金属を用いる。Fe-Al合金は、例えば、Fe:92.5~97.5%、Al:2.5~7.5%の組成比のものを用いれば良く、Fe-Al-Si合金は、例えばFe:90~97%、Al:3.5~6.5%、Si:0.1~5%の組成比のものを用いれば良い。一般に、AlやSiの組成比は、次の3つの要因を考慮して決定すれば良い。

**【0017】**

(1) 磁気特性を向上させるには、AlやSiが少ない方が良い。

(2) 金属間化合物を形成しない固溶限界内とする。

(3) 酸化膜の膜厚は、目標電気抵抗値を確保できる膜厚以上とする。

尚、Fe-Al合金、Fe-Al-Si合金、Fe-Si合金、Feのうちの2種以上を混合するようにしても良い。

**【0018】**

この軟磁性粉末の製造原料にCu<sub>2</sub>O等のCu系粉末を例えば0.5~2%(より好ましくは約1%)に添加することが望ましい。例えば、Fe-Al系粉末にCu系粉末を添加して粉碎すれば、Fe-Al系粉末の表面に部分的にFe-Al-Cu合金層が形成され、その後の表面酸化工程で、このFe-Al-Cu合金層が酸化されて絶縁性と柔軟性

に優れた酸化膜 ( $\text{FeAlCuO}$  膜) が形成される。尚、軟磁性粉末に添加する金属は、 $\text{Cu}$  系に限定されず、 $\text{Fe}$  合金となり、且つ、絶縁性や柔軟性が  $\text{Fe}$  よりも高ければ、 $\text{Cu}$  以外の金属を用いても良い。

#### 【0019】

粉碎装置は、軟磁性粉末の平均粒径を例えば  $100\ \mu\text{m}$  以下に粉碎できるアトライターを用いれば良い。このアトライターにより、軟磁性粉末の平均粒径が、 $0.01\sim100\ \mu\text{m}$  となるように粉碎し、軟磁性粉末の表面に高活性の破面を形成する。尚、軟磁性粉末の平均粒径のより好ましい範囲は、 $0.01\sim10\ \mu\text{m}$ 、更に好ましい範囲は、 $0.01\sim5\ \mu\text{m}$ 、最も好ましい範囲は、 $0.01\sim1\ \mu\text{m}$  である。軟磁性粉末の製造原料は、粉碎しやすいように、焼鈍（アニール）前のものを用い、粉碎中は、粉碎熱による軟磁性粉末の昇温を抑制するために、粉碎用のステンレス容器を水冷する。

#### 【0020】

##### [表面活性化工程]

粉碎装置で粉碎した軟磁性粉末の表面には、 $\text{Cu}_2\text{O}$  や  $\text{OH}$  基等が付着して不活性になっているため、粉碎工程終了後に、表面活性化工程に進む。この表面活性化工程では、還元性雰囲気中にて、軟磁性粉末を  $800^\circ\text{C}$  前後に加熱して、粉末表面に付着した  $\text{Cu}_2\text{O}$  や  $\text{OH}$  基等を還元して軟磁性粉末の表面を活性化すると共に、軟磁性粉末を焼鈍（アニール）して軟磁性粉末を軟化させる。これにより、後述するプレス成形工程で、軟磁性粉末間の空隙を押し潰すように軟磁性粉末が変形しやすくなり、軟磁性材料中の磁性材の密度を高密度化することができる。

#### 【0021】

この表面活性化工程では、軟磁性粉末を焼鈍するのに軟磁性粉末を内部まで加熱する必要があるため、軟磁性粉末を加熱する手段は、電気炉等の一般的な加熱炉を用いれば良い。

#### 【0022】

##### [表面酸化工程]

表面活性化工程終了後に、表面酸化工程に進む。この表面酸化工程では、加熱手段としてミリ波焼結装置を用いて、酸化性雰囲気中（例えば  $\text{O}_2$  雰囲気中）で軟磁性粉末の表面を局所的に約  $800^\circ\text{C}$  程度に加熱して、軟磁性粉末の表面に酸化膜を形成する。

#### 【0023】

一般に、軟磁性粉末を製造する粉碎工程で、軟磁性粉末の表面が少し酸化されるので、表面酸化工程において、ミリ波焼結装置を用いれば、ミリ波焼結装置から放射されるミリ波のエネルギーが軟磁性粉末の電気抵抗値の大きい表面酸化部分に局所的に作用して、軟磁性粉末表面が局所的に高温に加熱される（図2参照）。これにより、軟磁性粉末の表面に数  $\text{nm}$  レベルの薄い酸化膜が均一に形成される。この際、酸化膜の膜厚は、ミリ波条件や、 $\text{Al}$ 、 $\text{Si}$  の含有量によって調整すれば良い。

#### 【0024】

使用的する軟磁性粉末が  $\text{Fe}-\text{Al}$  系又は  $\text{Fe}-\text{Al}-\text{Si}$  系の場合は、ミリ波焼結装置を用いて軟磁性粉末の表面を約  $800^\circ\text{C}$  程度に加熱すれば、 $\text{Fe}$  よりも酸化速度が速い  $\text{Al}$  や  $\text{Si}$  が軟磁性粉末の表面層に拡散して酸化され、軟磁性粉末の表面が  $\text{Al}$  や  $\text{Si}$  の酸化物で均一に覆われる（図2参照）。軟磁性粉末が  $\text{Fe}$  の場合は、粉末表面の  $\text{Fe}$  が酸化されて酸化鉄の酸化膜が形成される。

#### 【0025】

また、軟磁性粉末として、 $\text{Cu}$  系粉末が添加された  $\text{Fe}-\text{Al}$  系粉末を用いる場合は、粉碎工程で  $\text{Fe}-\text{Al}$  系粉末の表面に部分的に  $\text{Fe}-\text{Al}-\text{Cu}$  合金層が形成されるため、表面酸化工程で、この  $\text{Fe}-\text{Al}-\text{Cu}$  合金層が酸化されて絶縁性と柔軟性に優れた  $\text{FeAlCuO}$  膜が形成される。

#### 【0026】

この表面酸化工程で、ミリ波焼結装置に代えて、放電プラズマ焼結装置を用いて軟磁性粉末を加熱しても、放電プラズマのエネルギーが軟磁性粉末の電気抵抗値の大きい表面酸化

部分に局所的に作用して、軟磁性粉末表面が局所的に高温に加熱され、軟磁性粉末の表面に数 nm レベルの薄い酸化膜が均一に形成される。

### 【0027】

#### [成形材料作製工程]

表面酸化工程終了後に、成形材料作製工程に進む。この成形材料作製工程では、軟磁性粉末にバインダーと溶剤との溶解液を配合して十分に混練し、軟磁性粉末の成形材料を作製する。バインダーとしては、高密度化のために、粘着性とスリップ性の高い樟腦を用いると良い。溶剤としては、アセトン等の有機溶剤を用いれば良い。

#### [プレス成形工程]

成形材料作製工程終了後に、プレス成形工程に進む。このプレス成形工程では、成形型内に軟磁性粉末の成形材料を注入し、これを所定形状にプレス成形する。プレス圧力は、例えば 980 Pa (10 ton/cm<sup>2</sup>) とすれば良い。

### 【0028】

#### [脱バインダー工程]

プレス成形工程終了後に、脱バインダー工程に進み、軟磁性粉末のプレス成形物を電気炉等で 50 ~ 100 °C 程度に加熱して、プレス成形物中のバインダーと溶剤を気化（蒸発）させて取り除く。

#### [焼結工程]

脱バインダー工程終了後に、焼結工程に進む。この焼結工程では、表面酸化工程と同じく、加熱手段としてミリ波焼結装置を用いる。この焼結工程では、還元性雰囲気中（例えば N<sub>2</sub> 雰囲気中）にて、軟磁性粉末のプレス成形物を軟磁性粉末の表面の酸化膜周辺部が融点温度近傍である 1200 ~ 1300 °C 程度に温度上昇させるように加熱する。この焼結工程中は、ミリ波焼結装置から放射されるミリ波のエネルギーが電気抵抗値の大きい軟磁性粉末表面の酸化膜周辺部に局所的に作用することで、軟磁性粉末の内部温度をさほど上昇させることなく、軟磁性粉末表面の酸化膜周辺部のみが局所的に融点温度近傍（詳細には融点温度以下の温度）に効率良く加熱され、それによって、軟磁性粉末間の酸化膜どうしが拡散接合して、軟磁性材料の焼結物として一体化される。

### 【0029】

一般に、ミリ波とは 10 GHz ~ 300 GHz の周波数範囲のものを示す (10 GHz ~ 30 GHz を準ミリ波と呼ぶ) ことが多いが、本実施例 1 では、酸化膜周辺部を融点温度近傍に効率良く温度上昇させるために、10 GHz ~ 300 GHz の周波数範囲のミリ波を発生するミリ波焼結装置を用いて軟磁性粉末のプレス成形物を焼結する。

### 【0030】

この場合、焼結工程で、ミリ波焼結装置を用いるため、焼結工程前のプレス成形工程で、軟磁性粉末表面の酸化膜に亀裂が生じたとしても、その後の焼結工程で、軟磁性粉末表面の酸化膜が局所的に融点温度近傍に加熱されることで、その酸化膜が再び成長して酸化膜の亀裂が修復される。これにより、軟磁性粉末間の絶縁性を十分に確保できて、低鉄損の軟磁性材料を焼結できる。

### 【0031】

この焼結工程で、ミリ波焼結装置に代えて、放電プラズマ焼結装置を用いて軟磁性粉末を加熱しても、放電プラズマのエネルギーが軟磁性粉末表面の酸化膜に局所的に作用して、酸化膜が局所的に融点温度近傍に加熱されるため、酸化膜の亀裂を修復することができる。

### 【0032】

以上説明した本実施例 1 の軟磁性材料の製造方法で製造した軟磁性材料は、内燃機関の電磁駆動バルブ等の各種電磁駆動装置の軟磁性部品として使用することができる。

### 【0033】

本実施例 1 の軟磁性材料の製造方法では、焼結工程で、加熱手段としてミリ波焼結装置（又は放電プラズマ焼結装置）を用いるようにしたので、焼結工程前のプレス成形工程で、軟磁性粉末表面の酸化膜に亀裂が生じたとしても、その後の焼結工程で、軟磁性粉末表

面の酸化膜を局所的に融点温度近傍に加熱して、その酸化膜の亀裂を修復しながら、焼結することができる。これにより、軟磁性粉末間の絶縁性を十分に確保できて、低鉄損の軟磁性材料を焼結できる。

#### 【0034】

この場合、焼結工程で、酸化膜の亀裂を修復できるため、酸化膜の膜厚を厚く形成する必要がなく、数nmレベルの薄い酸化膜であっても、軟磁性粉末間の絶縁性を十分に確保できる。このような酸化膜の薄膜化により、軟磁性材料中の磁性材の密度を高密度化できて、高飽和磁束密度化（高透磁率化）を実現でき、磁気特性を向上することができる。しかも、酸化膜の薄膜化によって軟磁性粉末の小粒径化が可能となり、例えば、軟磁性粉末の平均粒径を $0.01 \sim 10 \mu\text{m}$ （より好ましくは $0.01 \sim 5 \mu\text{m}$ ）という微小粒径にすることが可能となり、下記のホールペッチの法則から明らかなように、軟磁性粉末の小粒径化によって軟磁性材料の高強度化が可能となる。

#### 【0035】

$$\text{ホールペッチの法則: } \sigma_y = \sigma_0 + k \cdot d^{-1/2}$$

ここで、 $\sigma_y$  は降伏応力、 $\sigma_0$  は最小降伏応力、 $k$  は定数、 $d$  は軟磁性粉末の粒径である。

#### 【0036】

上記ホールペッチの法則から明らかなように、軟磁性粉末の粒径  $d$  が小さくなるほど、降伏応力  $\sigma_y$  が大きくなるため、軟磁性粉末の小粒径化によって軟磁性材料の高強度化が可能となる。

#### 【0037】

しかも、本実施例1では、軟磁性粉末の粉碎工程で、軟磁性粉末の表面が少し酸化されることに着目して、表面酸化工程で、ミリ波焼結装置（又は放電プラズマ焼結装置）を用いて軟磁性粉末の表面を加熱するようにしたので、ミリ波（又は放電プラズマ）のエネルギーを軟磁性粉末の電気抵抗値の大きい表面酸化部分に局所的に作用させて、軟磁性粉末表面を局所的に高温に加熱することができ、軟磁性粉末の表面に数nmレベルの薄い酸化膜を均一に生成することができるという利点もある。

#### 【0038】

但し、本発明は、表面酸化工程において、ミリ波や放電プラズマ以外の加熱手段（例えば電気炉等）を用いて軟磁性粉末の表面に酸化膜を形成するようにしても良い。例えば、電気炉で酸化膜を形成する場合は、雰囲気温度（加熱温度）、加熱時間、軟磁性粉末のAl含有量やSi含有量によって酸化膜の膜厚を調整すれば良い。

#### 【0039】

また、焼結工程でミリ波や放電プラズマ以外の加熱手段（例えば電気炉等）を用いる場合でも、表面酸化工程において、ミリ波焼結装置又は放電プラズマ焼結装置を用いて酸化性雰囲気中で軟磁性粉末の表面を加熱して酸化膜を形成するようにしても良い。このようにすれば、軟磁性粉末の表面を局所的に融点温度近傍に加熱して、軟磁性粉末の表面に数nmレベルの薄い酸化膜を均一に生成することができる。

#### 【0040】

尚、本実施例1では、軟磁性粉末の成形材料を作製する際に、バインダーを配合するようにしたが、バインダーを配合せずに成形材料を作製するようにしても良い。

#### 【実施例2】

#### 【0041】

前記実施例1では、プレス成形工程終了後に、ミリ波焼結装置を用いて焼結工程を実行する（つまりプレス成形工程と焼結工程とを別々に実行する）ようにしたが、図3に示す実施例2では、前記実施例1と同様の方法で、軟磁性粉末の成形材料を作製した後、プレス成形・焼結工程に移行して、プレス成形と焼結とを同時に実行し、軟磁性粉末の成形材料を所定形状にプレス成形しながら該プレス成形物をミリ波焼結装置（又は放電プラズマ焼結装置）を用いて酸化膜周辺部を融点温度近傍に温度上昇させて焼結して軟磁性材料を製造するようにしている。

**【0042】**

このように、プレス成形と焼結とを同時に実行すれば、軟磁性粉末表面の酸化膜周辺部を融点温度近傍に加熱して酸化膜を成長させながらプレス成形を行うことができるため、酸化膜の亀裂発生を防止しながら焼結でき、或は、酸化膜の亀裂の端緒を修復しながら焼結でき、軟磁性粉末間の絶縁性を十分に確保した低鉄損の軟磁性材料を焼結できる。しかも、プレス成形と焼結とを同時に行えば、工程数を少なくでき、生産性を向上できるという利点もある。

**【図面の簡単な説明】****【0043】**

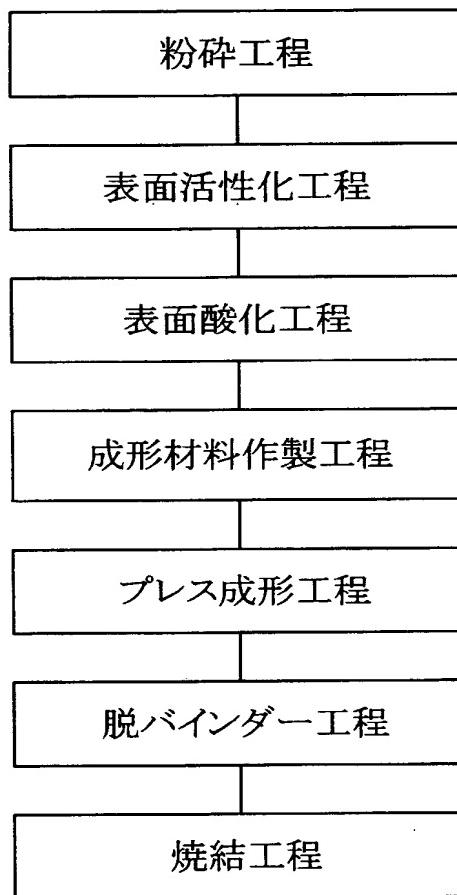
【図1】本発明の実施例1における軟磁性材料の製造工程を示す工程フローチャートである。

【図2】Fe-A1系粉末の表面酸化処理を説明する図である。

【図3】本発明の実施例2における軟磁性材料の製造工程を示す工程フローチャートである。

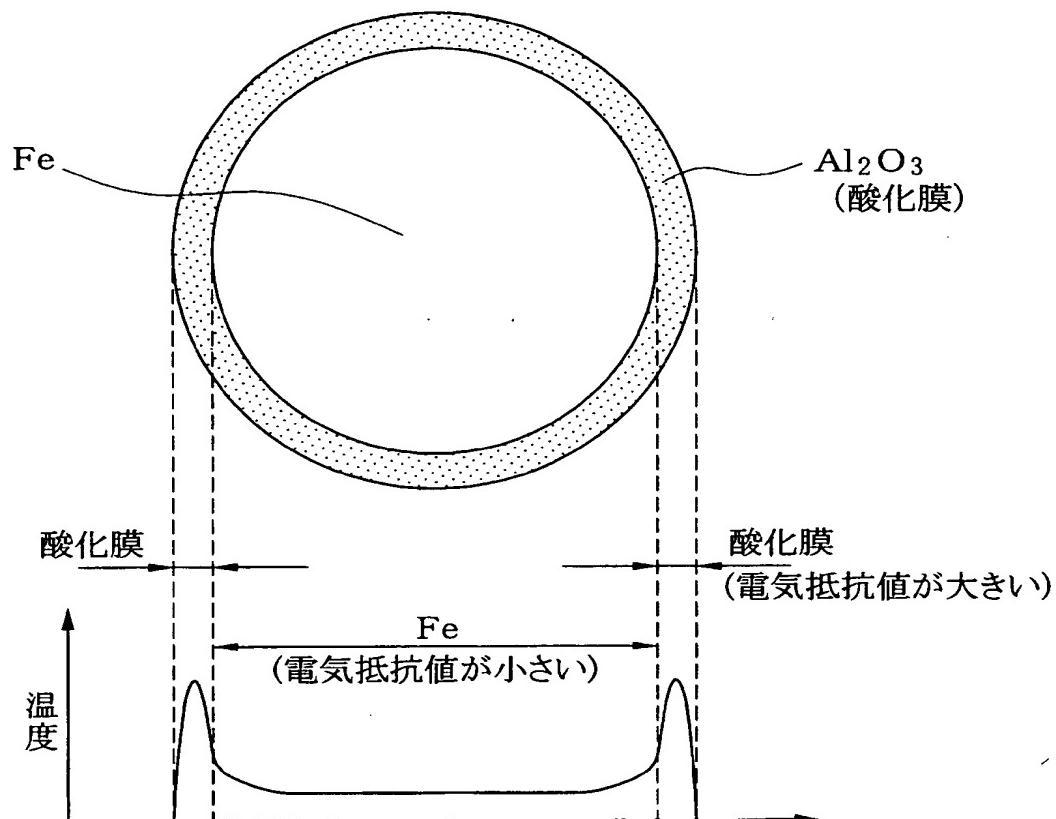
【書類名】図面  
【図1】

### 軟磁性材料の製造工程



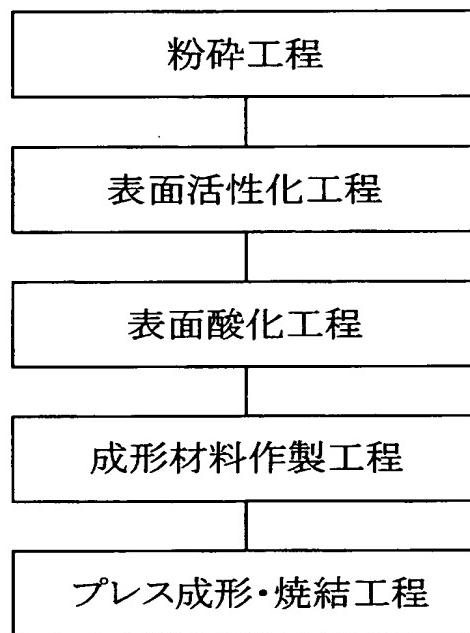
【図2】

### Fe-Al の表面酸化処理



【図3】

### 軟磁性材料の製造工程



【書類名】要約書

【要約】

【課題】 低鉄損、高密度、高強度、生産性の要求を全て高いレベルで満足する軟磁性材料を製造できるようにする。

【解決手段】 軟磁性粉末の表面に酸化膜を形成する表面酸化工程と、軟磁性粉末とバインダーとを所定の配合比で混合して軟磁性粉末の成形材料を作製する工程と、軟磁性粉末の成形材料を所定形状にプレス成形するプレス成形工程と、軟磁性粉末のプレス成形物を焼結して軟磁性材料を製造する焼結工程とを実行する。この際、表面酸化工程と焼結工程において、加熱手段としてミリ波焼結装置（又は放電プラズマ焼結装置）を用いる。これにより、ミリ波（又は放電プラズマ）のエネルギーが軟磁性粉末の電気抵抗値の大きい表面酸化部分に局所的に作用して、軟磁性粉末の表面が局所的に融点温度近傍に加熱され、軟磁性粉末の表面酸化（酸化膜の形成）や焼結（酸化膜どうしの拡散接合）が促進される。

【選択図】 図1

特願 2003-312303

出願人履歴情報

識別番号 [00004260]

1. 変更年月日 1996年10月 8日

[変更理由] 名称変更

住 所 愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地  
氏 名 株式会社デンソー